

⑪Int. Cl.³
B 29 D 3/02

識別記号
203

⑯日本国特許庁 (JP)
⑰公開特許公報 (A)

府内整理番号
7224-4F

⑪特許出願公開

昭59-184615

⑬公開 昭和59年(1984)10月20日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 3 頁)

④プリプレグの製法

⑫特 願 昭58-58931

⑫出 願 昭58(1983)4月4日

⑫發明者 山田誠

豊橋市牛川通り4の1の2三菱

レイヨン株式会社内

⑫發明者 角田午郎

豊橋市牛川通り4の1の2三菱

レイヨン株式会社内

⑫發明者 浅田史朗

豊橋市牛川通り4の1の2三菱

レイヨン株式会社内

⑫出願人 三菱レイヨン株式会社

東京都中央区京橋2丁目3番19

号

⑫代理人 弁理士 吉沢敏夫

明細書

1. 発明の名称

プリプレグの製法

2. 特許請求の範囲

塗布液を供給するための管体(1)の長手方向に管体内部から外方に連通するスリットを設け、該スリットに多孔質焼結体(2)を嵌合してなる塗布装置で塗布することを特徴とするプリプレグの製法。

3. 発明の詳細な説明

本発明は一方向引揃え強化繊維プリプレグのマトリックス樹脂を含浸する際に、多孔質焼結マトリックス樹脂を用いて製造するプリプレグの製法に関するものである。

一方向引揃え繊維強化プリプレグはゴルフシャフト、釣竿、バドミントンシャフトやテニスラケットのフレームなどのスポーツ、レジャーライフ用具等、車両用リーフスプリング、自動車用ドライビングシャフト、板ばね、その他積層板

など工業用材料としても広く利用されるようになつて来ている。

一方引揃え強化繊維プリプレグを製造する際の繊維へのマトリックス樹脂の含浸方法には大別して溶液法(ウェット法)と溶融法(ドライ法あるいはホットメルト法)があるが、この両方法において極めて重要なことは、一方向引揃え強化繊維に対し、プリプレグの巾方向及び長さ方向にこのマトリックス樹脂を均一に分布させることにある。プリプレグのマトリックス樹脂の不均一性は、成形物の層間密着性の不均一性や内部へのポイドの発生となり機械的特性良好な成形物を作ることが困難になる。

従来溶液法での塗布液の供給は、一般にはディップ法と呼ばれる塗布液中を回転するロールによって直接コーティングし、スキーズロールで定量化する方法やリバースロール法での多數のロールでの定量塗布、或いはドクターブレード法等が行なわれて来たが、ディップ法ではスキーズロールを用いると例えば溶媒の蒸発等で

ロールの粘着物質での汚れや巾、タテ方向の定数性に難があることやリバースロールの場合もロールの汚れと共に機械精度に対する要求が高く、高価である等不都合な点が多い。

そこで本発明者等は上述の如き不都合のない溶液法プリブレグを製造することを目的に検討し、簡便で安価な規定転移系の特定の塗布装置し、用いることによりマトリックス樹脂の均一液を用いることを見出し本発明に到達した。

本発明の要旨とするところは、塗布液を供給するための管体(1)の長手方向に管体内部から外する方に連通するスリットを設け、該スリットに多方に嵌合してなる塗布装置で塗布することを特徴とするプリブレグの製法に関するものである。

本発明に使用される塗布装置は管体の長手方向に内部から外方に連通するスリットを設け、そのスリット部分に接着剤にて取付可能な程度に大きさの合致する多孔質の焼結体を嵌合し、

溶液状マトリックス樹脂をその焼結体を通して一方向引掛け強化繊維に接触しながら塗布するものである。管体の径、長さ、その材質等に特に制限されるものではないが管体の径は、一般に取り扱いのし易さや単位時間の塗布量等からして30~100mm程度が好ましく、又管長についても通常のプリブレグの巾に適した300mm~1,000mmがよく、材質については一方向引掛け繊維との接触があるため少なくとも接触面の平滑性が加工面、維持面或いは耐溶媒性等の観点から金属製のもので、ステンレススチール製、クロムメッキ鉄製の管体が好ましい。更にプリブレグの巾の規制や管体両端からの塗布液の落下を防ぐために、管体の両端に適當な管径より大きいフランジを取付けると本発明の効果は更に大きくなる。更に長手方向に内部から外方に連通するスリットの巾にも特に制限はないが、スリット巾は3~10mmあれば充分である。スリットに嵌合される多孔質焼結体の材質、孔径、厚みに特に制限はないが、使用目的から

材質は金属粉体の焼結体が好ましく、真鍮の焼結体が特に好ましい。孔径は塗布液が溶液である点から比較的の低粘度であるため1μ以上で使用出来るが2μ以上5μ以下程度のものが好ましい。更に焼結体の厚みは塗布液の背圧を上げるため3mm以上で使用出来るが、好ましくは6mm以上10mm以下が好ましい。更に塗布液の管体への供給は焼結体の目詰りを防ぐため、焼結体より細かい沪材を通し沪過し、更に管体への導入は巾方向に均一に供給するため分岐管にて管体長手方向に分散注入するのが好ましい。更に液量の規制はギャボンプを用いることで定量供給可能となる。

本発明が対象とする一方向引掛け強化繊維は例えば炭素繊維、ガラス繊維、金属繊維、ポリマー繊維などの無機繊維類、全芳香族ポリアミド、ポリアミドイミド繊維などの有機繊維類或いはこれらの組合せなどである。繊維の厚みは0.05~0.5mm(繊維容積60%に換算)が適當で連続フィラメントの長さ、本数等に何ら制限を有

するものではない。

又本発明に用いられる一方向引掛け繊維に含浸される樹脂は、熱硬化性樹脂例えばエポキシ系樹脂、フェノール系樹脂或いは不飽和ポリエステル系樹脂等である。一方向引掛けプリブレグの樹脂含有量は10~60wt%でとくに30~45wt%の範囲が好ましい。

本発明によるプリブレグの一製造例を示すとスプールより繰り出された連続フィラメントをシート状になる様に一方向に引掛け、塗布液すなわちマトリックス樹脂の有機溶媒溶液を管体の長手方向に管体内部から外方に連通するスリットに多孔質の真鍮製焼結板を設けた塗布装置の該焼結体内部より巾方向に均一、定量に管体表面上を流下させ、その直下を連続フィラメントを軽く接触しながら通過させ、その後この引掛け樹脂含浸繊維の下方より離型紙を導入し貼り合わせ、次いで溶媒を揮散させるため乾燥部を通過させ、プリブレグを連続的に巻き上げる。

本発明によるプリプレグはマトリックス樹脂の巾方向、タテ方向の均一性は極めて良好で、これを用いてつくつた成形物の機械的特性も良好である。

以下実施例により本発明を説明する。

実施例 1

プリプレグ塗布用装置として次のものを使用した。

両端に厚み 5 mm、径 52 mm のフランジを付けた管外径 40 mm の、内径 12 mm の、管長 505 mm のステンレス製管体の長手方向全長に亘り、まず内部から深さ 7 mm まで巾 4 mm のスリットを設け、更に外部へ 7 mm まで巾 7 mm のスリットを設け、内部から外部へ連通したスリットを設けた。この外側のスリット部に長さ 515 mm、巾 6.9 mm、厚み 6.3 mm の公称孔径 2 μ の真鍮製焼結板を塗布液の通過を妨げない様にしながら、室温硬化性 2 液エポキシ樹脂で管体スリット部に挿入し接着した。又塗布液の塗布装置管体への供給は焼結体とはほぼ直角の方向から管体長手

方向に 4 箇所から分散注入し均一性を保つようとした。

塗布液はエポキシ樹脂組成物のメチルエチルケトン 60 % 溶液とし、公称 1.5 μ の孔径の円筒形真鍮製焼結フィルターを通して沪過し、ギヤポンプにて定量的に塗布装置に供給した。

これらの塗布装置を用い、平行に均一な張力で縦方向に引抜えられた連続炭素繊維トウに、マトリックス樹脂が 3.5 wt% 含有するよう塗布し、直後に下方より離型紙を導入し貼り合わせて、乾燥機中で溶媒を揮散させ 505 mm 巾のプリプレグを連続的に巻き上げた。

このプリプレグの巾方向でのマトリックス樹脂の分布は $3.5 \pm 1.0 \text{ wt\%}$ 、タテ方向には $3.5 \pm 0.5 \text{ wt\%}$ と極めて良好な分布を示した。

比較例

従来方式として塗布液を実施例 1 と同様のエポキシ樹脂組成物のメチルエチルケトン 28 wt% 溶液中で、実施例 1 と同様の一方向引抜え炭素繊維トウに含浸し引き上げた後、離型紙を下方

より挿入しプリプレグとして巻き上げた。
このプリプレグの巾方向のマトリックス樹脂の分布は巾方向で $3.6 \pm 1.5 \text{ wt\%}$ 、タテ方向 $3.6 \pm 3 \text{ wt\%}$ となり明らかに樹脂分布が悪かつた。
更に樹脂液槽内は炭素繊維で次第に汚れてくる他、液からの引上げに使用するローラーに樹脂が次第にたい積し繊維の巻き付きが起こるなど不都合な点が多くかつた。

代理人 吉沢 敏夫